



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Unsteady-state Catalytic Systems for Direct CO ₂ Capture and Reduction [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	宮崎, 真太
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16387号
Issue Date	2025-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/94866
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	MIYAZAKI_Shinta_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 宮崎 眞太

学 位 論 文 題 名

Unsteady-state catalytic systems for direct CO₂ capture and reduction

(直接 CO₂回収・還元の有効な非定常触媒反応プロセスの開発)

カーボンニュートラル社会の創出に向けて、世界的に CO₂ の排出削減の取り組みが進められている。その中で、CO₂ をメタンやメタノールなどの化学燃料や合成ガスを経由して付加価値のある化学物質に変換する技術は CO₂ 排出量を低減させる取り組みとして有望な方法とされている。一方で原料となる CO₂ の大気や排ガスからの分離・回収には多大なエネルギーが必要であり、より効率的な方法の開発が求められている。近年、ガス切替を伴う非定常操作を用いた直接 CO₂ 回収・水素化プロセスが大気や排ガスなどの混合ガス中の CO₂ を分離・精製せず直接変換できる技術として注目を集めている。本研究では、非定常触媒反応プロセスを用いた直接 CO₂ 回収・還元技術とその基盤となる触媒の開発を行った。以下に主要な成果をまとめる。

第1章では、地球温暖化の主因とされる CO₂ とその化学変換による解決策について概説した。その中でも特に非定常触媒反応プロセスの有用性に注目し、CO₂ 吸蔵還元プロセスなどの研究例、及び実用化にむけた課題について概説した。

第2章では Pt と Na を Al₂O₃ 上に担持した触媒 (Pt-Na/Al₂O₃) が低温(350 °C)で、Cs を Al₂O₃ 上に担持した触媒 (Cs/Al₂O₃) が高温 (500 °C) での CO₂ 吸蔵・水素化による選択的 CO 生成に有効であることを見出した。Pt-Na/Al₂O₃ 触媒では、種々の構造解析より Na で表面修飾された Pt ナノ粒子の形成が支持された。また、吸蔵 CO₂ の水素化により生成した CO の Pt 表面への吸着が阻害されていることが分かった。Na 修飾により Pt 表面での CH₄ への逐次水素化が抑制され、高い CO 選択性が発現していることが示唆された。また、第3章では Ni と Ca を Al₂O₃ 上に担持した触媒 (Ni-Ca/Al₂O₃) が様々な温度帯(300~500 °C)での CO₂ 吸蔵・水素化による選択的 CH₄ 生成に有効であることを見出した。これらの触媒に対して種々の *operando* 分光法を実施し、その反応機構を明らかにした。

第4章では温度スイング吸着法による O₂・CO₂ 分離とメタネーション触媒及び逆水性ガスシフト触媒を組み合わせたタンデム型非定常触媒反応プロセスの開発を行った。種々のゼオライトを検討し最も高い CO₂ 吸蔵能を示した Rb 担持ゼオライトを CO₂ 吸着材として、Ni/CeO₂ をメタネーション触媒として、Cu/ZnO/Al₂O₃ を逆水性ガスシフト触媒として用いた。大気・排ガスを想定した低濃度から高濃度の CO₂ 水素化を検討したところ高い CO₂ 転化率、目的物選択性を示した。

第5章ではケミカルループ型メタンドライリフォーミングに有効なセリウム担持 Ni 触媒及び Ni 担持タングステン酸ジルコニア (Ni/WO₃/ZrO₂) 触媒を開発した。Ni/WO₃/ZrO₂ 触媒では WO₃ 担持量が 10 wt% の触媒が最も効率的に CL-DRM 反応を促進した。ZrO₂ 表面の W 密度と種々の *in situ/operando* 分光測定により、高分散な W 種が酸素貯蔵サイトとして機能していることを明らかにした。

第6章では、本博士研究を総括した。本論文では CO₂ 吸蔵還元、タンデム型非定常触媒反応、ケミカルループ

法などの非定常反応プロセスの有用性について提案した。提案した触媒反応プロセスは従来の平衡系に支配されない点やエネルギー消費効率の高さから、直接空気回収技術に組み込むなどの応用が期待される。これらの成果は、カーボンニュートラル社会の実現に向けた重要な基盤技術となる可能性を示している。